

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

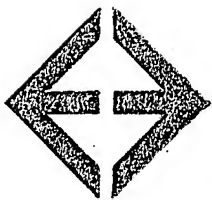
Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



# RALPH MCELROY TRANSLATION COMPANY

AF

EXCELLENCE WITH A SENSE OF URGENCY®


September 19, 2002

Re: 6486-89535

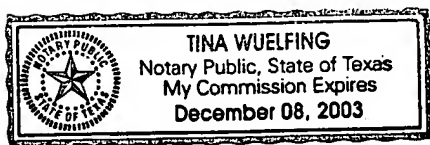
To Whom It May Concern:

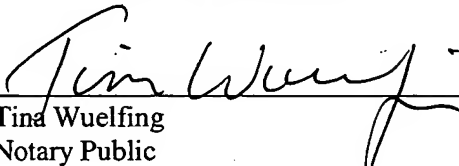
This is to certify that a professional translator on our staff who is skilled in the Japanese language translated the enclosed Japanese Kokai Patent Application No. Hei 2[1990]-138159 from Japanese into English.

We certify that the attached English translation conforms essentially to the original Japanese language.

  
\_\_\_\_\_  
Kim Vitray  
Operation Manager

Subscribed and sworn to before me this 19 day of SEPTEMBER, 2002.



  
\_\_\_\_\_  
Tina Wuelfing  
Notary Public

My commission expires: December 8, 2003

sales@mcelroytranslation.com  
www.mcelroytranslation.com

(512) 472-6753  
1-800-531-9977

910 WEST AVE.  
AUSTIN, TEXAS 78701



FAX (512) 472-4591  
FAX (512) 479-6703

Japanese Kokai Patent Application No. Hei 2[1990]-138159

---

Job No.: 6486-89535

Ref.: JP 2-138159

Translated from Japanese by the Ralph McElroy Translation Company  
910 West Avenue, Austin, Texas 78701 USA

JAPANESE PATENT OFFICE  
PATENT JOURNAL (A)  
KOKAI PATENT APPLICATION NO. HEI 2[1990]-138159

Int. Cl. <sup>5</sup> :	C 07 C 233/22 A 01 N 37/18 37/38 C 07 C 235/34
Sequence Nos. for Office Use:	8519-4H 6779-4H
Filing No.:	Sho 63[1988]-292348
Filing Date:	November 21, 1988
Publication Date:	May 28, 1990
No. of Claims:	2 (Total of 8 pages)
Examination Request:	Not filed

P-ARYLOXYARALKYLAMINE DERIVATIVES, INSECTICIDES AND MITOCIDES

Inventors:	Hiroyuki Oyama B-22-19, 36-20 Tsutsumi, Chigasaki-shi, Kanagawa-ken  Tatsuya Masumizu 201 Oshin Realty Building 2-9-27 Higashi-Yawata, Hiratsuka-shi, Kanagawa-ken  Maharu Ogami Kitaoki Chemical Dormitory 2385 Toda, Atsugi-shi, Kanagawa-ken  Yasunori Sato 101 Aoki Terrace 2148-1 Okami, Hiratsuka-shi, Kanagawa-ken
------------	--

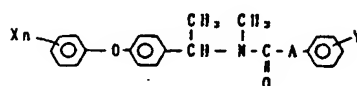
Satoru Moriyama  
2-10-1 Morinosato, Atsugi-shi,  
Kanagawa-ken

Applicant:

Kitaoki Chemical Ind. Co., Ltd.  
4-4-20 Motoishi-cho, Nihonbashi,  
Chuo-ku, Tokyo

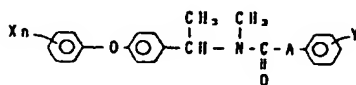
### Claims

1. p-Aryloxyaralkylamine derivatives represented by the general formula:



(in this formula, X represents a halogen atom or a lower haloalkyl group, n is 1 or 2, Y represents a hydrogen atom, a halogen atom, a lower alkyl group, a lower haloalkyl group, or a lower alkoxy group, and A represents a lower alkylene group or a lower alkenylene group).

2. Insecticides or mitocides characterized by the fact that they contain, as active ingredients, p-aryloxyaralkylamine derivatives represented by the general formula:



(in this formula, X represents a halogen atom or a lower haloalkyl group, n is 1 or 2, Y represents a hydrogen atom, a halogen atom, a lower alkyl group, a lower haloalkyl group, or a lower alkoxy group, and A represents a lower alkylene group or a lower alkenylene group).

### Detailed explanation of the invention

Objective of the invention

Industrial application field

The present invention relates to novel p-aryloxyaralkylamine derivatives. More specifically, it relates to novel p-aryloxyaralkylamine derivatives represented by general formula (I) to be given later and insecticides or mitocides containing said derivatives. Therefore, the present invention is useful in the chemical industry and agriculture, especially the agrochemical manufacturing field.

#### Prior art

In regard to aryloxyaralkylamine derivatives to date, the N-acetyl derivative of 4-phenoxybenzylamine is described in Pharmaceutical Britain Vol. 5, pp. 397-400 (1957). However, the presence or absence of its insecticidal and mitocidal activity is not known. Furthermore, there are no descriptions in the literature on the derivatives as shown in the present invention.

#### Problems to be solved by the invention

As agricultural and horticultural insecticides and mitocides to date, several types, like organic phosphorus compounds, carbamate compounds, organic chlorine compounds, pyrethroid compounds, and so on have been used. Nevertheless, the appearance of active agent formulations with high safety has been desired. Use of active agents with a strong toxicity to people and animals, active agent formulations with a residue problem, and so on has reduced gradually. Therefore, limited use of active agent formulations is common. As a result, noxious insects and mites have resistance with respect to these active agent formulations. A reduction in insecticidal or mitocidal effectiveness has become a problem. In particular, Nephrotettix are important noxious insects that often appear in paddy fields in Japan that show a strong resistance to organophosphorus insecticides and carbamate insecticides. Throughout the world, mites showing resistance to dicofol (Kelthane) appeared. There have been major problems in countermeasures for prevention and elimination. Thus, the appearance of compounds with new structures which are safe for people and animals and have a strong effect on noxious insects and mites resistant to conventional active agent formulations has been in great demand.

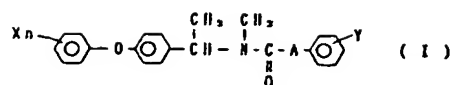
The present invention is to provide novel insecticides and mitocides in order to satisfy these desires.

#### Constitution of the invention

##### Means to solve the problems

In order to achieve the objective mentioned previously, the present inventors have synthesized many aryloxyaralkylamine derivatives and their usefulness was rigorously investigated. As a result, we have discovered that the p-aryloxyaralkylamine derivatives represented by general formula (I) to be given later are novel compounds not described in the literature, they have a high insecticidal and mitocidal activity and high safety with respect to people and animals, and said objective is achieved.

Therefore, the essence of the first present invention is p-aryloxyaralkylamine derivatives represented by general formula (I):



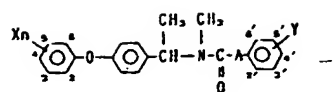
(in this formula, X represents a halogen atom or a lower haloalkyl group, n is 1 or 2, Y represents a hydrogen atom, a halogen atom, a lower alkyl group, a lower haloalkyl group, or a lower alkoxy group, and A represents a lower alkylene group or a lower alkenylene group).

Furthermore, the essence of the second present invention is insecticides or mitocides characterized by the fact that they contain, as active ingredients, p-aryloxyaralkylamine derivatives represented by general formula (I) mentioned previously.

Next, typical specific examples of compounds of the present invention with general formula (I) are shown in Table 1. The compound numbers are also used for reference in the following application examples and test examples.

Unless otherwise stated specifically in this document, the compound of the present invention has at least one asymmetric carbon atom. The number of asymmetric carbon atoms can be increased with a substituent group, for example, of type A. With by these, any type of optical isomer can be present. If A is an alkenylene group, geometric isomers will be present. The present invention includes a single substance of these isomers or a mixture of any type and ratio.

Table 1



① 化合物No	X n	Y	A	物性値 ②
1	4-Cl	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5410
2	4-Cl	4'-Cl	-CH-   CH <sub>3</sub>	$n_D^{25}$ 1.5528
3	4-F	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5409
4	4-Br	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5418
5	2,4-Cl <sub>2</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5504
6	2,4-Cl <sub>2</sub>	4'-Cl	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5364
7	2,4-Cl <sub>2</sub>	4'-F	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5555
8	3,4-Cl <sub>2</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5346
9	3,4-Cl <sub>2</sub>	2'-Cl	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5432
10	2-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5425
11	3-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5350
12	4-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5546
13	4-CF <sub>3</sub>	H	-CH-   CH <sub>3</sub>	$n_D^{25}$ 1.5471

① 化合物No	X n	Y	A	物性値 ②
14	4-CF <sub>3</sub>	H	-CH-CH-	$n_D^{25}$ 1.5342
15	4-CF <sub>3</sub>	2'-Cl	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5587
16	4-CF <sub>3</sub>	3'-Cl	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5400
17	4-CF <sub>3</sub>	4'-Cl	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5432
18	4-CF <sub>3</sub>	2'-F	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5391
19	4-CF <sub>3</sub>	3'-F	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5347
20	4-CF <sub>3</sub>	4'-F	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5416
21	4-CF <sub>3</sub>	4'-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5579
22	4-CF <sub>3</sub>	4'-CF <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5523
23	4-CF <sub>3</sub>	2'-CH <sub>2</sub> O	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5354
24	4-CF <sub>3</sub>	4'-CH <sub>2</sub> O	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5431
25	2,4-(CF <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5403
26	2-Cl-4-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5532
27	2-Cl-4-CF <sub>3</sub>	4'-Cl	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5612
28	2-Cl-4-CF <sub>3</sub>	4'-F	-CH <sub>2</sub> -	$n_D^{25}$ 1.5307
29	2-Cl-4-CF <sub>3</sub>	H	-CH-   CH <sub>3</sub>	$n_D^{25}$ 1.5315



① 化合物No	X n	Y	A	物性値 ②
3 0	2-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5507
3 1	2-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	H	-CH-CH-	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5453
3 2	3-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5451
3 3	3-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	4'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5363
3 4	3-CF <sub>3</sub> -4-C <sub>2</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5579
3 5	3-CF <sub>3</sub> -4-C <sub>2</sub>	4'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5386

Key: 1      Compound No.  
       2      Physical properties

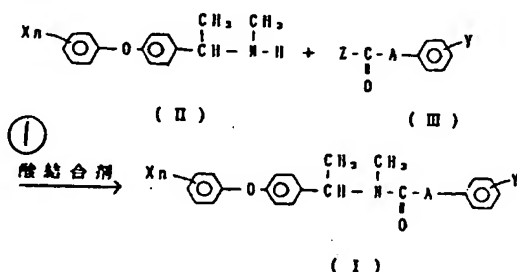
### Operation

Compounds of general formula (I) of the present invention are novel compounds. The compounds of general formula (I) function as insecticidal and mitocidal ingredients in agricultural and horticultural fields.

### Application examples

#### Manufacture of the compounds of the present invention

The compound of general formula (I) of the first present invention can be manufactured by the reaction of a carboxylic acid halide shown by general formula (III) with a p-aryloxyaralkylamine derivative represented by general formula (II):



Key: 1      Acid-binding agent

(in this reaction, X, n, Y and A are the same as those mentioned previously, and Z represents a halogen atom).

This condensation reaction is generally carried out in an organic solvent. As the solvents that can be used, benzene, toluene, hexane or other hydrocarbon; chloroform, chlorobenzene or other halogenated hydrocarbons; ethyl ether, dioxane, tetrahydrofuran or other ethers; methyl

acetate, ethyl acetate or other esters; acetone, methyl isobutyl ketone or other ketones; acetonitrile, propionitrile or other nitriles; methyl alcohol, ethyl alcohol or other alcohols; dimethyl formamide, dimethyl acetamide or other amides; dimethyl sulfoxide or the like are available.

As acid-binding agents, sodium hydride, sodium amide, sodium hydroxide, potassium carbonate or other inorganic bases, triethylamine, pyridine or other organic bases can be used.

Although the reaction can proceed at room temperature, by heating within a range up to the boiling point of the solvent, the reaction time can be shortened. After completion of the reaction, if a base or the like is present as an acid-binding agent, this is filtered off. By distilling off the solvent, the desired product can be obtained. By the addition of water and benzene, toluene, tetrahydrofuran, chloroform or other organic solvent for partitioning of the desired product, and then distilling off the solvent, the desired compound of the present invention can also be obtained. Manufacturing examples of the compounds of the present invention by these methods are shown in Application Examples 1 and 2.

The compound of formula (II) as the starting material is a publicly-known compound or it can be easily manufactured by the reaction of the corresponding halide and methylamine by a method similar to that for the publicly-known compound, for example, the manufacturing method described in United Kingdom Patent No. 720,593 (1954). The manufacturing example of the compound of formula (II) by this method is shown in the reference manufacturing example. Compounds of formula (II) manufactured by this method are shown in Table 2. The compound of formula (III) is a publicly-known compound.

#### Application Example 1 Manufacture of N-methyl N- $\alpha$ -methyl-p-(4-trifluoromethylphenoxy)benzylphenylacetamide (Compound No. 12)

10.1 g of triethylamine, 100 mL of toluene, and 15.5 g of phenyl acetyl chloride were added dropwise under water cooling to a mixture of 29.5 g of methyl  $\alpha$ -methyl-p-(4-trifluoromethyl phenoxy)benzylamine. It was stirred at room temperature for 1 h. After completion of the reaction, the deposited salt was filtered off and the filtrate was concentrated, and the title compound was obtained at 38.8 g as a light yellow oily substance. After this substance was purified by silica gel column chromatography using a hexane-acetone mixed solvent, it became a colorless oily substance with  $n_D^{23} = 1.5546$ .

#### Application Example 2 Manufacture of N-methyl N- $\alpha$ -methyl-p-(2-chloro-4-trifluoromethylphenoxy)benzylphenylacetamide (Compound No. 26)

By conducting the reaction and treatment in the same manner as in Application Example 1 by using 33.0 g of methyl  $\alpha$ -methyl-p-(2-chloro-4-trifluoromethylphenoxy)benzylamine,

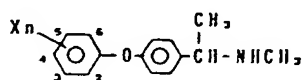
10.1 g of triethylamine, 100 mL of chloroform and 15.5 g of phenylacetyl chloride, the title compound was obtained at 41.2 g as a light yellow oily substance. After this substance was purified by silica gel column chromatography using a hexane-ethyl acetate mixed solvent, it became a colorless oily substance with  $n_D^{23} = 1.5532$ .

#### Reference Production Example

##### Manufacture of methyl $\alpha$ -methyl-p-(4-trifluoromethylphenoxy)benzyl amine

A mixture of 30.1 g of  $\alpha$ -methyl-(4-trifluoromethylphenoxy)benzyl chloride, 15.5 g of a 40% aqueous methylamine solution, and 100 mL of ethanol were stirred at 60°C for 3 h. After completion of the reaction, toluene and water were added and the toluene layer was separated out. It was dried over anhydrous sodium sulfate. The solvent was distilled off under reduced pressure and the title compound was obtained at 31.7 g as a light yellow oily substance. After this substance was purified by silica gel column chromatography using a hexane-acetone mixed solvent, it became a colorless oily substance with  $n_D^{23} = 1.5136$ .

Table 2



① 化合物 No.	X n	物性値 ②
1	4-Cl	$n_D^{23}$ 1.5043
2	4-F	$n_D^{23}$ 1.5096
3	2,4-Cl <sub>2</sub>	$n_D^{23}$ 1.5242
4	3,4-Cl <sub>2</sub>	$n_D^{23}$ 1.5283
5	2-CF <sub>3</sub>	$n_D^{23}$ 1.5264
6	3-CF <sub>3</sub>	$n_D^{23}$ 1.5167
7	4-CF <sub>3</sub>	$n_D^{23}$ 1.5136
8	2,4-(CF <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	$n_D^{23}$ 1.5249
9	2-Cl-4-CF <sub>3</sub>	$n_D^{23}$ 1.5262
10	3-Cl-4-CF <sub>3</sub>	$n_D^{23}$ 1.5342
11	3-CF <sub>3</sub> -4-Cl	$n_D^{23}$ 1.5283

Key: 1 Compound No.  
2 Physical properties

## Application examples

### Methods for the preparation of formulations for insecticides and mitocides

Using the compound of general formula (I) mentioned previously, the insecticides and mitocides of the second present invention can be prepared as a formulation in the desired state as an emulsion, a wetting formulation, a liquid formulation, a flowable (sol.) formulation, a powder formulation, a driftless (DL) dust formulation, a granular formulation, a microgranular formulation, a tablet formulation, or the like. As supports that can be used here, any solid or liquid can be used as long as it is conventionally used in agricultural or horticultural active agent formulations, without being restricted to special materials. For example, as solid supports, mineral powders (kaolin, bentonite, clay, montmorillonite, talc, diatomaceous earth, mica, vermiculite, gypsum, calcium carbonate, apatite, white carbon, slaked lime, ammonium sulfate, urea, and so on), plant powders (soybean powder, wheat powder, wood powder, tobacco powder, starch, crystalline cellulose, and so on), polymer compounds (petroleum resin, polyvinyl chloride, ketone resin, dammar gum, and so on), alumina, silicate, saccharide polymers, highly disperse silicic acid, waxes, and so on can be mentioned. As liquid supports, water, alcohols (methyl alcohol, ethyl alcohol, n-propyl alcohol, isopropyl alcohol, butanol, ethylene glycol, benzyl alcohol, and so on), aromatic hydrocarbons (toluene, benzene, xylene, ethyl benzene, methyl naphthalene, and so on), halogenated hydrocarbons (chloroform, carbon tetrachloride, dichloromethane, chloroethylene, monochlorobenzene, trichlorofluoromethane, dichlorodifluoromethane, and so on), ethers (ethyl ether, ethylene oxide, dioxane, tetrahydrofuran, and so on), ketones (acetone, methyl ethyl ketone, cyclohexanone, methyl isobutyl ketone, isophorone, and so on), esters (ethyl acetate, butyl acetate, ethylene glycol acetate, amyl acetate, and so on), acid amides (dimethylformamide, dimethylacetamide, and so on), nitriles (acetonitrile, propionitrile, acrylonitrile, and so on), sulfoxides (dimethyl sulfoxide and so on), alcohol ethers (ethylene glycol monomethyl ether, ethylene glycol monoethyl ether, and so on), aliphatic or alicyclic hydrocarbons (n-hexane, cyclohexane, and so on), industrial gasoline [products] (petroleum ether, solvent naphtha, and so on), petroleum distillates (paraffins, kerosene, light oil, and so on), and so on can be mentioned.

During the preparation of an emulsion, a wetting agent, a flowability agent or the like, a variety of surfactants or emulsifying agents can be used for the purpose of emulsification, dispersion, solubilization, wetting, foaming, lubrication, diffusion [sic] or the like. As such surfactants, nonionic type (polyoxyethylene alkyl ether, polyoxyethylene alkyl ester, polyoxyethylene sorbitan alkyl ester, sorbitan alkyl ester, and so on), anionic type (alkyl benzenesulfonate, alkyl sulfosuccinate, alkyl sulfate, polyoxyethylene alkyl sulfate, aryl sulfonate or the like), cationic type (alkylamines (laurylamine, stearyltrimethylammonium chloride, alkyl dimethylbenzyl ammonium chloride and so on), polyoxyethylene alkylamines),

amphoteric type (carboxylic acid (betaine type), sulfuric acid ester salts and so on), and so on can be mentioned. However, they are not restricted to these examples only. In addition to these, polyvinyl alcohol, carboxymethylcellulose, gum arabic, polyvinyl acetate, gelatin, casein, sodium alginate, tragacanth gum and a variety of other auxiliary agents can be used.

During the manufacture of the variety of formulations mentioned previously in the present invention, the formulations can be prepared by containing the compound of the present invention in the range of 0.001% to 95% (wt%, the same hereafter), preferably 0.01% to 90%. For example, in the case of a powder formulation, a DL dust formulation, or a micropowder formulation (F), it is contained at 0.01-5%. In the case of a granular formulation, it is contained at 0.01-10%. In the case of a wetting formulation, an emulsion, or a liquid formulation, it is contained at 1-75%.

The formulation prepared in this manner, for example, in the case of a wetting formulation, an emulsion, a sol. formulation or the like, is diluted with water or an appropriate solvent. It can be sprayed so that the amount of the active component per 10 ares is in the range of 0.3-300 g or so.

In using the compound of the present invention as an insecticide or a mitocide, it can be mixed with a known insecticide, mitocide, a sterilizing agent or the like in any ratio in an attempt to increase the applicability. Depending on the situation, a synergistic effect can also be expected.

The method for the preparation of the compound of general formula (I) of the present invention into a formulation as an insecticide or a mitocide will be explained on the basis of Application Examples 3 through 6. However, the present invention is not to be restricted to these application examples. It can be mixed with a variety of other additives in any ratio.

In the application examples, "parts" represents parts by weight.

#### Application Example 3 (Emulsion)

40 parts of Compound No. 12, 20 parts of Sorpol 700H (commercial product name of an emulsifier manufactured by Toho Chemical Ind. Co., Ltd.), and 40 parts of xylene were uniformly mixed to obtain an emulsion.

#### Application Example 4 (Wetting formulation)

15 parts of Compound No. 26, 15 parts of white carbon, 3 parts of calcium lignin sulfonate, 2 parts of polyoxyethylene nonyl phenyl ether, 5 parts of diatomaceous earth, and 60 parts of clay were uniformly mixed with a pulverizing mixer to obtain a wetting formulation.

#### Application Example 5 (Powder formulation)

1.5 parts of Compound No. 32 and 98.5 parts of clay were uniformly mixed and pulverized to obtain a powder formulation.

#### Application Example 6 (Granular formulation)

15 parts of water were added to 5 parts of Compound No. 5, 1.5 parts of lauryl sulfate, 1.5 parts of calcium lignin sulfonate, 25 parts of bentonite, and 67 parts of white clay. After kneading with a kneader, it was granulated with a granulator and dried in a fluidizing dryer to obtain a granular formulation.

#### Effect of the invention

The compounds of the present invention exhibit a high prevention and elimination effectiveness with respect to liquid-sucking noxious insects, biting noxious insects or a variety of other noxious insects and mites. They are also useful in the extermination of plant parasitic noxious insects, stored grain noxious insects, and medically noxious insects. They have an extremely high insecticidal and mitocidal effect with respect to *Nephotettix cincticeps* with resistance to organophosphorus insecticides and carbamate insecticides, and to mites with resistance to dicofol, which are especially problematic. Furthermore, the compounds of the present invention virtually do no agent damage to useful crops. Therefore, they can be used for the extermination of a wide range of noxious insects and mites shown in the following.

#### Coleoptera

Adzuki bean beetles, maize weevils, kokumustomodoki [transliteration], *Epilachnasera*, *Agroires fuscicollis*, *Anomala cuprea*, *Anomala refocuprea* Motschulsky, filtrate starlight fabricius [sic], *Lissorhoptrus oryzophilus*, etc.

#### Lepidoptera

*Lymantria dispar*, green caterpillars, *Spodoptera litura*, rice stem borer, *Adoxophyes orana* Fisher von Roeslerstamm, almond moth, *Agrotis segetum* Denise & Schiffermüller, *Agrotis ipsilon* Hufnagel, *Plutellary lastell* [sic; possibly, *Plutella xylostella*], etc.

#### Hemiptera

*Nephotettix cincticeps*, brown plant hopper, *Laodelphax striatella* Fallen, *Pseudococcus comstocki* Kuwana, *Myzus persicae*, *Aphis gossypii* Glover, *Myzus maliscutus*, etc.

### Orthoptera

*Blattella germanica*, *Periplaneta americana*, *Gryllotalpa orientalis*, *Oxya zoensis* [sic], etc.

### Diptera

*Musca domestica* Linnaeus, *Aedes aegypti*, seed corn fly, *Culex tritaeniorhynchus* Giles, onion fly, etc.

### Acarina

*Tetranychus cinnabarinus*, *Tetranychus kanzawai* Kishida, *Tetranychus urticae* Koch, *Panonychus citri*, *Panonychus ulmi* Koch, *Aculops pelekassi* Keifer, etc.

Next, specific examples of the usefulness and the effectiveness of the compounds of the present invention are given in Test Examples 1 and 2.

### Test Example 1 Prevention and elimination effectiveness test with respect to resistant *Nephotettix cincticeps*

In a square pot made of black vinyl and 6 cm on a side, young rice plants were set. When the leaves were about 40 cm, a certain amount of a powder formulation of the present invention prepared according to Application Example 5 was spread on the stems and leaves of the rice plants with a mizzeto [transliteration] duster. After spreading, the young rice plants were covered with a cylinder made of vinyl chloride with a diameter of 11 cm. Placed inside this circular cylinder were 20 *Nephotettix* female imagos (3 days after wing growth) exhibiting resistance to an organophosphorus insecticides and carbamate type insecticides. This pot was placed at a constant temperature of 25°C. After 48 h, the insect knockout ratio (%) was determined.

This test was carried out in a three-pot system for each drug agent concentration. The average insect inhibition rate (%) was calculated. The results are shown in Table 2 [sic; 3].

Table 3

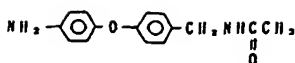
① 化合物 No.	活性成分量 (g/107- $\mu$ )	抑転虫率 (%) ③
1	② 5.0	100
2	5.0	100
3	5.0	100
4	5.0	100
5	5.0	100
6	5.0	100
7	5.0	100
8	5.0	100
9	5.0	100
10	5.0	100
11	5.0	100
12	5.0	100
13	5.0	100
14	5.0	100
15	5.0	100
16	5.0	100
17	5.0	100
18	5.0	100
19	5.0	100
20	5.0	100
21	5.0	100
22	5.0	100

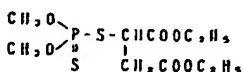
① 化合物 No.	活性成分量 (g/107- $\mu$ ) ②	抑転虫率 (%) ③
23	5.0	100
24	5.0	100
25	5.0	100
26	5.0	100
27	5.0	100
28	5.0	100
29	5.0	100
30	5.0	100
31	5.0	100
32	5.0	100
33	5.0	100
34	5.0	100
35	5.0	100
④ 比較薬剤 A	5.0	0
比較薬剤 B	15.0	5
比較薬剤 C	15.0	10

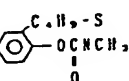
Key: 1 Compound No.  
 2 Active ingredient amount (g/10 are)  
 3 Insect knockout rate (%)  
 4 Comparative active agent formulation



Comparative active agent formulation A: 

(The compound described in Pharmaceutical Bulletin, Vol. 5, pp. 397-400)

Comparative active agent formulation B:   
(Common name: malathion)

Comparative active agent formulation C:   
(Common name: BPMC)

Test Example 2 Prevention and elimination effectiveness test with respect to resistant *namidani* [transliteration]

In a square pot made of black vinyl and 6 cm on a side, young string bean plants were set. During the first leaf developing period, 20 *Tetranychus urticae* Koch female imagoes resistant to dicofol during successive generation breeding were added per pot for inoculation and attachment. After 24 h, a solution diluted to the specified concentration of the wetting formulation of the present invention prepared according to Application Example 4 was spread at 30 mL per pot. The pots were then placed at a constant temperature of 25°C. After 14 days, the number of parasitic *Tetranychus urticae* Koch female imagoes was examined, and the prevention-elimination value (%) was determined.

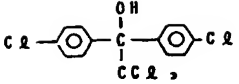
This test was carried out in a three-pot system for each active agent formulation concentration. The average prevention-elimination value (%) was calculated. The results are shown in Table 3 [sic; 4].

Table 4

① 化合物 No.	② 处理液浓度 (g/107- <i>h</i> )	③ 防除值 (%)
1	30	100
2	30	100
3	30	100
4	30	100
5	30	100
6	30	100
7	30	100
8	30	100
9	30	100
10	30	100
11	30	100
12	30	100
13	30	100
14	30	100
15	30	100
16	30	100
17	30	100
18	30	100
19	30	100
20	30	100

① 化合物 No.	② 处理液浓度 (g/107- <i>h</i> )	③ 防除值 (%)
21	30	100
22	30	100
23	30	100
24	30	100
25	30	100
26	30	100
27	30	100
28	30	100
29	30	100
30	30	100
31	30	100
32	30	100
33	30	100
34	30	100
35	30	100
④ 比较药剂 A	30	0
比较药剂 D	300	23

Key: 1 Compound No.  
 2 Treating active agent formulation solution concentration (g/10 are)  
 3 Prevention-elimination value (%)  
 4 Comparative active agent formulation \_\_\_\_

Comparative active agent formulation D:   
 (Common name: dicofol)

AF

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

平2-138159

⑬ Int. Cl.<sup>3</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 平成2年(1990)5月28日

C 07 C 233/22  
A 01 N 37/18A  
Z8519-4H  
6779-4H  
6779-4H  
6779-4H  
8519-4H37/38  
C 07 C 235/34

審査請求 未請求 請求項の数 2 (全8頁)

⑮ 発明の名称 バラアリアルオキシアラルキルアミン誘導体および殺虫・殺ダニ剤

⑯ 特 願 昭63-292348

⑰ 出 願 昭63(1988)11月21日

⑱ 発 明 者 大 山 廣 志 神奈川県茅ヶ崎市堤36番地20 B-22-19  
 ⑱ 発 明 者 舩 水 辰 也 神奈川県平塚市東八幡2丁目9番27号 大真不動産ビル  
 201号  
 ⑱ 発 明 者 尾 上 真 治 神奈川県厚木市戸田2385番地 北興化学寮  
 ⑱ 発 明 者 佐 藤 泰 典 神奈川県平塚市大神2148番地の1 青木テラス101  
 ⑱ 発 明 者 森 山 知 神奈川県厚木市森の里2丁目10番1号  
 ⑲ 出 願 人 北興化学工業株式会社 東京都中央区日本橋本石町4丁目4番20号

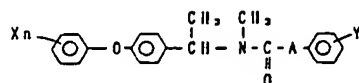
## 明 細 書

## 1. 発明の名称

バラアリアルオキシ<sup>ル</sup>アラルキルアミン誘導体および殺虫・殺ダニ剤

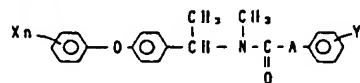
## 2. 特許請求の範囲

## 1) 一般式



(式中Xは、ハロゲン原子または低級ハロアルキル基を示し、nは1または2を示し、Yは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基または低級アルコキシ基を示し、Aは低級アルキレン基または低級アルケニレン基を示す)で表されるバラアリアルオキシアラルキルアミン誘導体。

## 2) 一般式



(式中Xは、ハロゲン原子または低級ハロアル

キル基を示し、nは1または2を示し、Yは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基または低級アルコキシ基を示し、Aは低級アルキレン基または低級アルケニレン基を示す)で表されるバラアリアルオキシアラルキルアミン誘導体を活性成分として含有することを特徴とする殺虫・殺ダニ剤。

## 3. 発明の詳細な説明

## 発明の目的

## (産業上の利用分野)

本発明は、新規なバラアリアルオキシアラルキルアミン誘導体に関するものである。より詳しくは、後記の一般式(I)で表される新規なバラアリアルオキシアラルキルアミン誘導体ならびに当該誘導体を含有する殺虫・殺ダニ剤に関するものである。したがって、本発明は、化学工業ならびに農業、特に農薬製造業分野で有用である。

## (従来技術)

これまでアリアルオキシアラルキルアミン誘導体に関しては、ファーマシューティカル プリ

ティン 第5巻、第397-400頁(1957年)に4-フェノキシベンジルアミンのN-アセチル誘導体が記載されている。しかし、その殺虫・殺ダニ活性の有無については知られていない。また、本発明にみるような誘導体に関する文献的記載はない。

#### (発明が解決しようとする課題)

これまで農園芸用殺虫剤、殺ダニ剤としては、有機リン系化合物、カーバメート系化合物、有機塩素系化合物、ピレストロイド系化合物などの数多くの種類が使用されている。ところが、より安全性の高い薬剤の出現が望まれるようになり、人畜毒性の強い薬や、残留問題のある薬剤などが次第に使用されなくなってきた。このため、限られた薬剤を重用することが多くなっている。その結果、これらの薬剤に対し、害虫、ダニ類が抵抗性を有するようになり、殺虫あるいは殺ダニ効果の低下が問題となっている。特に我が国の水田の重要害虫であるツマグロヨコバイは、有機リン系殺虫剤、カーバメート系殺虫剤に強い抵抗性を

示すものが多く出現している。また、世界的にはジコホル(ケルセン)に抵抗性を示すダニが出現し、防除対策上大きな問題となっている。したがって、農園芸用殺虫剤、殺ダニ剤に関しては、人畜に安全で従来の薬剤抵抗性の害虫・ダニ類に強力な効果を有する新しい構造の化合物の出現が切望されている。

本発明は、これらの要望をも満たした新規な殺虫・殺ダニ剤を提供するとするものである。

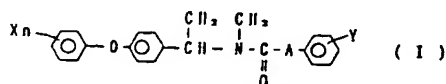
#### 発明の構成

##### (課題を解決するための手段)

本発明者らは、上記の目的を達成するために数多くのアリールオキシアラルキルアミン誘導体を合成し、それらの有用性について鋭意検討した。その結果、後記の一般式(I)で示されるパラアリールオキシアラルキルアミン誘導体が文献未記載の新規化合物であり、高い殺虫・殺ダニ活性と有用作物や人畜等に対する安全性を有し、上記目的を達成するものであることを見出した。

したがって、第1の本発明の要旨とするところ

は、次の一般式(I)



(式中Xは、ハロゲン原子または低級ハロアルキル基を示し、nは1または2を示し、Yは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基または低級アルコキシ基を示し、Aは低級アルキレン基または低級アルケニレン基を示す)で表されるパラアリールオキシアラルキルアミン誘導体にある。

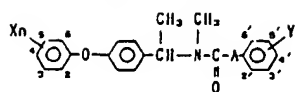
また、第2の本発明の要旨とするところは、上記一般式(I)のパラアリールオキシアラルキルアミン誘導体を活性成分として含有することの特徴とする殺虫・殺ダニ剤にある。

次に一般式(I)の本発明化合物の代表的な具体例を第1表に示す。ただし、化合物No.は、以下の実施例および試験例でも参照される。

なお、本明細書では特に言及していないが、本発明化合物は少なくとも不斉炭素原子を1個有

し、置換基、例えばAの種類によってはさらに不斉炭素原子が増加することがあり、これらにより光学異性体が何種類か存在する。またAがアルケニレン基の場合は幾何異性体が存在する。本発明はこれら異性体の単一物あるいは任意の種類、割合での混合物を包含するものである。

図 1 表



化合物No	X n	Y	A	物性値
1	4-C <sub>2</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5410
2	4-C <sub>2</sub>	4'-C <sub>2</sub>	-CH-   CH <sub>2</sub>	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5528
3	4-F	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5409
4	4-Br	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5418
5	2,4-C <sub>2</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5504
6	2,4-C <sub>2</sub>	4'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5384
7	2,4-C <sub>2</sub>	4'-F	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5555
8	3,4-C <sub>2</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5346
9	3,4-C <sub>2</sub>	2'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5432
10	2-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5425
11	3-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5350
12	4-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5546
13	4-CF <sub>3</sub>	H	-CH-   CH <sub>2</sub>	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5471

化合物No	X n	Y	A	物性値
30	2-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5507
31	2-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	H	-CH=CH-	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5453
32	3-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5451
33	3-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	4'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5363
34	3-CF <sub>3</sub> -4-C <sub>2</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5579
35	3-CF <sub>3</sub> -4-C <sub>2</sub>	4'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5386

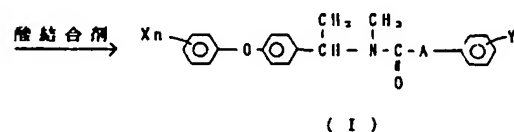
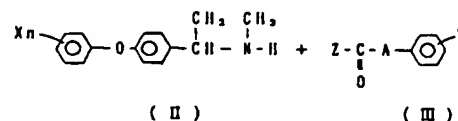
化合物No	X n	Y	A	物性値
14	4-CF <sub>3</sub>	H	-CH=CH-	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5342
15	4-CF <sub>3</sub>	2'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5587
16	4-CF <sub>3</sub>	3'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5400
17	4-CF <sub>3</sub>	4'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5432
18	4-CF <sub>3</sub>	2'-F	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5391
19	4-CF <sub>3</sub>	3'-F	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5347
20	4-CF <sub>3</sub>	4'-F	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5416
21	4-CF <sub>3</sub>	4'-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5579
22	4-CF <sub>3</sub>	4'-CF <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5523
23	4-CF <sub>3</sub>	2'-CH <sub>2</sub> O	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5354
24	4-CF <sub>3</sub>	4'-CH <sub>2</sub> O	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5431
25	2,4-(CF <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5403
26	2-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5532
27	2-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	4'-C <sub>2</sub>	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5612
28	2-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	4'-F	-CH <sub>2</sub> -	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5307
29	2-C <sub>2</sub> -4-CF <sub>3</sub>	H	-CH-   CH <sub>2</sub>	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5315

## 作用

本発明の一般式 (I) の化合物は、新規化合物である。そして、この一般式 (I) の化合物は、農薬分野の殺虫・殺ダニ活性成分として作用する。

## (実施例)・本発明化合物の製造法

第1の本発明による一般式 (I) の化合物は、一般式 (II) で示されるパラアリアルオキシラルキルアミン誘導体に、一般式 (III) で示される、カルボン酸ハライド類を反応させることにより製造できる。



(式中、X、n、Y、Aは前記に同じであり、Zはハロゲン原子を示す)

この縮合反応は、通常有機溶媒中で行う。使用できる溶媒としては、ベンゼン、トルエン、ヘキサンなどの炭化水素類、クロロホルム、クロルベンゼンなどのハロゲン化炭化水素類、エチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類、酢酸メチル、酢酸エチルなどのエステル類、アセトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン類、アセトニトリル、プロピオニトリルなどのニトリル類、メチルアルコール、エチルアルコールなどのアルコール類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなどのアミド類およびジメチルスルホキシドなどである。

酸結合剤としては、水素化ナトリウム、ナトリウムアミド、水酸化ナトリウム、炭酸カリウムなどの無機塩基、あるいはトリエチルアミン、ピリジンなどの有機塩基が使用できる。

反応は室温でも進行するが、溶媒の沸点までの範囲で加熱することにより、反応時間を短縮できる。反応終了後は、酸結合剤の塩類などが存在する場合は、これを濾別し、溶媒を留去することに

より、目的物を得ることができる。また水とベンゼン、トルエン、テトラヒドロフラン、クロロホルムなどの有機溶媒を加えて目的物を分取し、溶媒を留去することによっても、本発明化合物を得ることができる。このような方法による本発明化合物の製造例を実施例 1-2 に示した。

なお、出発原料である (II) 式化合物は、公知化合物または公知化合物類似の方法、例えば、英国特許第 720,593 号公報 (1954 年) に記載の製造法に準じ、対応するハライドとメチルアミンとの反応により容易に製造できる。この方法による (II) 式化合物の製造例を参考製造例に示した。またその方法により製造された (II) 式化合物を第 2 表に示した。また、(III) 式化合物は公知化合物である。

(実施例 1) N-メチル N- $\alpha$ -メチル-p-(4-トリフルオルメチルフェノキシ)ベンジルフェニルアセトアミド (化合物 No. 12) の製造  
メチル  $\alpha$ -メチル-p-(4-トリフルオ

ルメチルフェノキシ)ベンジルアミン 29.5 g、トリエチルアミン 10.1 g およびトルエン 100 ml の混合物にフェニルアセチルクロライド 15.5 g を水冷下滴下し、室温で 1 時間攪拌した。反応終了後、析出した塩を濾別し、濾液を濃縮すると、標記化合物が淡黄色油状物として 38.8 g 得られた。このものをヘキサン-アセトン混合溶媒を使用したシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製すると無色油状物となり、 $n_D^{25} = 1.5546$  を示した。

(実施例 2) N-メチル N- $\alpha$ -メチル-p-(2-クロル-4-トリフルオルメチルフェノキシ)ベンジルフェニルアセトアミド (化合物 No. 26) の製造

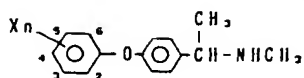
メチル  $\alpha$ -メチル-p-(2-クロル-4-トリフルオルメチルフェノキシ)ベンジルアミン 33.0 g、トリエチルアミン 10.1 g、クロロホルム 100 ml、フェニルアセチルクロライド 15.5 g を使用し、実施例 1 と同様に

反応させて処理をすると、標記化合物が淡黄色油状物として 41.2 g 得られた。このものをヘキサン-酢酸エチル混合溶媒を使用したシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製すると無色油状物となり、 $n_D^{25} = 1.5532$  を示した。

(参考製造例) メチル  $\alpha$ -メチル-p-(4-トリフルオルメチルフェノキシ)ベンジルアミンの製造

$\alpha$ -メチル-p-(4-トリフルオルメチルフェノキシ)ベンジルクロライド 30.1 g、40% メチルアミン水溶液 15.5 g およびエタノール 100 ml の混合物を 60°C で 3 時間攪拌する。反応終了後、トルエンと水を加えてトルエン層を分取し、無水硫酸ナトリウムで乾燥する。減圧にて溶媒を留去すると、標記化合物が淡黄色油状物として 31.7 g 得られた。このものをヘキサン-アセトン混合溶媒を使用したシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製すると無色油状物となり、 $n_D^{25} = 1.5136$  を示した。

第 2 表



化合物 No.	X n	物 性 値
1	4-Cl	$n_D^{25}$ 1.5043
2	4-F	$n_D^{25}$ 1.5096
3	2,4-Cl <sub>2</sub>	$n_D^{25}$ 1.5242
4	3,4-Cl <sub>2</sub>	$n_D^{25}$ 1.5283
5	2-CF <sub>3</sub>	$n_D^{25}$ 1.5264
6	3-CF <sub>3</sub>	$n_D^{25}$ 1.5167
7	4-CF <sub>3</sub>	$n_D^{25}$ 1.5136
8	2,4-(CF <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	$n_D^{25}$ 1.5249
9	2-Cl-4-CF <sub>3</sub>	$n_D^{25}$ 1.5262
10	3-Cl-4-CF <sub>3</sub>	$n_D^{25}$ 1.5342
11	3-CF <sub>3</sub> -4-Cl	$n_D^{25}$ 1.5283

ルコール、エチルアルコール、*n*-プロピルアルコール、*iso*-プロピルアルコール、ブタノール、エチレングリコール、ベンジルアルコールなど)、芳香族炭化水素類(トルエン、ベンゼン、キシレン、エチルベンゼン、メチルナフタレンなど)、ハロゲン化炭化水素類(クロロホルム、四塩化炭素、ジクロルメタン、クロルエチレン、モノクロルベンゼン、トリクロルフルオルメタン、ジクロルジフルオルメタンなど)、エーテル類(エチルエーテル、エチレンオキシド、ジオキサン、テトラヒドロフランなど)、ケトン類(アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、メチルイソブチルケトン、イソホロンなど)、エステル類(酢酸エチル、酢酸ブチル、エチレングリコールアセテート、酢酸アミルなど)、酸アミド類(ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなど)、ニトリル類(アセトニトリル、プロピオニトリル、アクリロニトリルなど)、スルホキシド類(ジメチルスルホキシドなど)、アルコールエーテル類(エチレングリコールモノメチル

## (実施例) 殺虫・殺ダニ剤の製剤化方法

また、第2の本発明の殺虫・殺ダニ剤は、前記一般式(I)の化合物を慣用の処方により、乳剤、水和剤、液剤、フロアブル(ソル)剤、粉剤、ドリフトレス(DL)粉剤、粒剤、微粒剤、錠剤などの適宜の形態として調製できる。ここに使用される担体としては、農薬用薬剤に常用されるものならば固体または液体のいずれでも使用でき、特定のものに限定されるものではない。例えば、固体担体としては、鉱物質粉末(カオリン、ペントナイト、クレイ、モンモリロナイト、タルク、珪藻土、雲母、パーミキュライト、石膏、炭酸カルシウム、リン灰石、ホワイトカーボン、消石灰、珪砂、磁安、尿素など)、植物質粉末(大豆粉、小麦粉、木粉、タバコ粉、でんぷん、結晶セルロースなど)、高分子化合物(石油樹脂、ポリ塩化ビニル、ケトン樹脂、ダンマルガムなど)、アルミナ、ケイ酸塩、懸重合体、高分散性ケイ酸、ワックス類などが挙げられる。また液体担体としては、水、アルコール類(メチルア

ルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテルなど)、脂助剤または脂環式炭化水素類(*n*-ヘキサン、シクロヘキサンなど)、工業用ガソリン(石油エーテル、ソルベントナフサなど)、石油留分(パラフィン類、灯油、軽油など)、などが挙げられる。

また、乳剤、水和剤、フロアブル剤などの製剤に際して、乳化、分散、可溶化、湿潤、発泡、潤滑、拡張などの目的で各種の界面活性剤または乳化剤が使用される。このような界面活性剤としては、非イオン型(ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエステル、ポリオキシエチレンソルビタンアルキルエステル、ソルビタンアルキルエステルなど)、陰イオン型(アルキルベンゼンスルホネート、アルキルスルホサクシネート、アルキルサルフェート、ポリオキシエチレンアルキルサルフェート、アリールスルホネートなど)、陽イオン型(アルキルアミン類(ラウリルアミン、ステアリルトリメチルアンモニウムクロライド、アルキルジメチル



ベンジルアンモニウムクロライドなど)、ポリオキシエチレンアルキルアミン類)、両性型(カルボン酸(ペタイン型)、硫酸エステル塩など)、などが挙げられるが、もちろんこれらの例示のみに限定されるものではない。また、これらのほかにポリビニルアルコール、カルボキシメチルセルロース、アラビアゴム、ポリビニルアセテート、ゼラチン、カゼイン、アルギン酸ソーダ、トラガカントガムなどの各種補助剤を使用することができる。

本発明においては、前期した各種製剤を製造するに際して、本発明化合物を0.001%~95%(重量%:以下同じ)、好ましくは0.01%~90%の範囲で含有するように製剤化することができる。例えば、通常、粉剤、DL粉剤、散粉剤(F)の場合は、0.01%~5%、粒剤の場合は0.01%~10%、水和剤、乳剤、液剤の場合は1%~75%の範囲で含有できる。

このように調製された製剤は、例えば、水和剤、乳剤およびゾル剤などの場合は、水または適

当な溶剤に希釈し、10アール当り活性成分量として0.3~300g程度の範囲となるように散布すればよい。

また、本発明化合物を殺虫・殺ダニ剤として使用するに際して、既知の殺虫剤・殺ダニ剤あるいは殺菌剤などと任意の割合で混用して適用性の拡大を図ることができ、また場合によっては相乗効果を期待することもできる。

前記一般式(I)の本発明化合物を殺虫・殺ダニ剤として製剤化する方法について実施例3~6をもって説明する。ただし、本発明はこれらの実施例に限定されるものではなく、他の種々の添加物と任意の割合で混合できる。

なお、実施例中で部とは、すべて重量部を示す。

#### 実施例3(乳剤)

化合物No.12の化合物 40部、ソルポール700H(東邦化学工業株式会社製乳化剤の商品名) 20部およびキシレン 40部を均一に混合して乳剤を得る。

#### 実施例4(水和剤)

化合物No.26の化合物 15部、ホワイトカーボン 15部、リグニンスルホン酸カルシウム 3部、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル 2部、けいそう土 5部およびクレー60部を粉碎混合機で均一に混合して、水和剤を得る。

#### 実施例5(粉剤)

化合物No.32の化合物 1.5部およびクレー 98.5部を均一に混合粉碎して、粉剤を得る。

#### 実施例6(粒剤)

化合物No.5の化合物 5部、ラウリルサルフェート 1.5部、リグニンスルホン酸カルシウム 1.5部、ペントナイト 25部および白土 67部に水 15部を加えて黏練機で黏練した後、造粒機で造粒し、流動乾燥機で乾燥して、粒剤を得る。

#### (発明の効果)

本発明の化合物は、吸被害虫、叩しゅく害虫な

どの種々の害虫類、ダニ類に高い防除効果を示す。また、植物寄生害虫、貯蔵害虫、衛生害虫の駆除にも有用である。そのうちでも特に問題となっている有機リン系殺虫剤、カーバメート系殺虫剤に抵抗性を示すツマグロヨコバイおよびジコホルに抵抗性を示すダニ類に極めて高い殺虫・殺ダニ作用を有する。また、本発明化合物は、有用作物に対してほとんど被害を与えない。それゆえ、次に示すような広範囲の害虫、ダニ類の駆除のために使用できる。

#### 鞘翅目害虫(Coleoptera)

アズキゾウムシ、コクゾウムシ、コクムストモドキ、ニジュウヤホシテントウ、トビイロムナボソコメツキ、ドウガネブイブイ、ヒメコガネ、キスジノミハムシ、イネミズゾウムシなど。

#### 鱗翅目害虫(Lepidoptera)

マイマイガ、アオムシ、ハスモンヨトウ、ニカメイチュウ、リンゴコカクモンハマキ、コナメダラメイガ、カブラヤガ、タマナガヤ、コナガなど。

半翅目害虫(Hemiptera)

ツマグロヨコバイ、トビイロウンカ、ヒメトビ  
ウンカ、クワコナガイガラムシ、モモアカブラ  
ムシ、ワタアブラムシ、リンゴアブラムシなど。

直翅目害虫(Orthoptera)

チャバネゴキブリ、ワモンゴキブリ、ケラ、コ  
バネイナゴなど。

双翅目害虫(Diptera)

イエバエ、ネッタイシマカ、タネバエ、コガタ  
アカイエカ、タマネギバエなど。

ダニ類(Acarina)

ニセナミハダニ、カンザワハダニ、ナミハダ  
ニ、ミカンハダニ、リンゴハダニ、ミカンサビダ  
ニなど。

次に、本発明化合物の有用性、作用効果の具体  
例を試験例1～2により示す。

試験例1 抵抗性ツマグロヨコバイに対する防除効果試験

一辺が6cmの黒ビニール製の角ポットに稲苗  
を植え、その草丈が約40cmとなったときに、

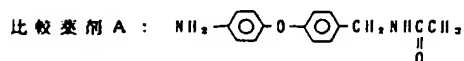
実施例5にしたがって調整した本発明の粉剤の所  
定量をミゼットダスターにより稲の茎葉に散布し  
た。散布後、直径11cmの塩化ビニール製円筒  
で稲苗を覆い、この円筒内に有機磷系虫剤および  
カーバメート系殺虫剤に抵抗性を示す系統のツマ  
グロヨコバイ雌成虫(羽化3日後)を20匹放っ  
た。そしてこのポットを25℃の恒温下に置き、  
48時間後に仰転虫率(%)を求めた。

本試験は1薬剤濃度区あたり3ポット制で行  
い、その平均仰転虫率(%)を算出した。その結  
果は第2表のとおりである。

第 3 表

化合物No.	活性成分量 (g/107-μ)	仰転虫率 (%)
1	50	100
2	50	100
3	50	100
4	50	100
5	50	100
6	50	100
7	50	100
8	50	100
9	50	100
10	50	100
11	50	100
12	50	100
13	50	100
14	50	100
15	50	100
16	50	100
17	50	100
18	50	100
19	50	100
20	50	100
21	50	100
22	50	100

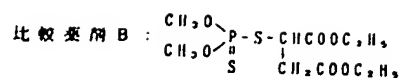
化合物No.	活性成分量 (g/107-μ)	仰転虫率 (%)
23	50	100
24	50	100
25	50	100
26	50	100
27	50	100
28	50	100
29	50	100
30	50	100
31	50	100
32	50	100
33	50	100
34	50	100
35	50	100
比較薬剤A	50	0
比較薬剤B	150	5
比較薬剤C	150	10



(ファーマシューティカル プリ

ティン 第5巻、第397-400

頁に記載の化合物)



(一般名: マラチオン)

3表のとおりである。

第 4 表

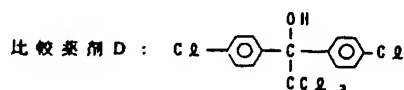
化合物 No.	処理薬剤濃度 (g/107-h)	防 除 価 (%)
1	30	100
2	30	100
3	30	100
4	30	100
5	30	100
6	30	100
7	30	100
8	30	100
9	30	100
10	30	100
11	30	100
12	30	100
13	30	100
14	30	100
15	30	100
16	30	100
17	30	100
18	30	100
19	30	100
20	30	100

試験例 2 抵抗性ナミダニに対する防除効果試験

一辺が6cmの大きさの黒ビニール製角ポットにインゲン苗を植え、その第1本葉展開期に、黒代飼育中のジコホル抵抗性のナミハダニ雌成虫を、1ポット当たり20頭ずつ接種して定着させ、産卵させた。そしてその24時間後に、実施例4にしたがって調製した本発明の水和剤の所定濃度希釈液を1ポット当たり30mlずつ散布した。その後ポットを25℃の恒温下に置き、14日後に寄生しているナミハダニの雌成虫数を調べ、防除価(%)を求めた。

本試験は、1薬剤濃度区あたり3ポット個で行い、平均防除価(%)を算出した。その結果は第

化合物 No.	処理薬剤濃度 (g/107-h)	防 除 価 (%)
21	30	100
22	30	100
23	30	100
24	30	100
25	30	100
26	30	100
27	30	100
28	30	100
29	30	100
30	30	100
31	30	100
32	30	100
33	30	100
34	30	100
35	30	100
比較薬剤 A	30	0
比較薬剤 D	300	23



(一般名: ジコホル)

特許出願人 北興化学工業株式会社